

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

硼酸ランタン系ガラスの屈折率と Abbe 数

今 岡 稔・山 崎 敏 子

(東京大学生産技術研究所)

Refractive Index and Abbe's Number of Glass of Lanthanum Borate System

By

Minoru IMAOKA and Toshiko YAMAZAKI

(Inst. of Industrial Science, Tokyo University, Chiba City)

Abstract

On the basis of previous studies of the glass formation range of borate systems and the relation of composition, refractive index and Abbe's number of borate glass, optical region of lanthanum borate glasses on n_D - ν diagram and its possible limit of high-refractive and low dispersive side were investigated. These lanthanum borate glasses contained oxides of Ti, Zr, Th, Nb, Ta, W, Ba, and Al, and their glass formation range of 4- or 5-component systems were studied. Then the refractive index and Abbe's number of lanthanum borate glasses were measured and from their data and following equations the component factors were calculated.

$$n_D = 1.445 + \sum_i a_i + \sum_i b_i x_i^2$$

$$\nu = (n_D - 1) / (0.521 + \sum_i k_i x_i) n_D$$

a_i , b_i , k_i and x_i are component factors and molar fraction of $M_{in}O_m$.

As a result, it has been proved that calculated values show good agreement with experimental values. On the basis of this result, then, optical region was researched on n_D - ν diagram. And the resulted limiting line of high refractive and low dispersive side passes every point of $n_D=1.70$, $\nu=55$; $n_D=1.80$, $\nu=50$; $n_D=1.90$, $\nu=40$ and $n_D=2.00$, $\nu=35$.

Received August 29, 1961

I. はしがき

高屈折低分散ガラスとして、稀元素を含む硼酸ランタン系ガラスが注目されたのは、1940 年来的ことであり、その後この系統のガラスはいろいろ実用化されているが、ほとんど特許¹⁾で、公表されているデータは乏しく、組織的研究発表はない。それでこれまでのガラス化範囲のデータや組成と屈折率、Abbe 数の関係の知識を基礎にして、この系統のガラスが n_D - ν 図表中に占める位置、高屈折低分散の側での可能な限界、といった点を明らかにしてみたいと考えた。そのためにはまずそのガラス化範囲を明らかにする必要があり、また各成分酸化物の屈折率、分散率に対する成分因子を決める必要があるが、それらは實際上利用価値のある基礎データでもあり、従来の研究²⁻⁴⁾をこの方向に拡げてゆくことは、十分意味のあることと考えた。

II. ガラス化範囲

まず硼酸、酸化ランタン以外の成分としては、この系統のガラスに従来の使われていたチタン、ジルコン、トリウム、ニオブ、タンタル、タングステンなどの a 族高原子価元素の酸化物を対象とした。もちろんこれ以外

の成分も考えられるわけで、アルミニウムやバリウムを含む系についても若干調べた。しかしその他の a 族酸化物は屈折率を高める効果に乏しく、また b 族元素もカドミウムなど使われている例もあるが、組成と屈折率の関係も a 族酸化物を対象に調べて来た関係もあり、いずれもこの際は除外した。

そこでガラス化範囲を知らねばならないが、これら硼酸塩 3 成分系のガラス化範囲はすでに調べてあるので⁵⁾、それを基礎にして 4 成分系および 5 成分系のガラス化範囲を求めてみた。実験方法も従来同様⁶⁾ 1/80 mol. スケール (約 1~2 g) で、白金-ロジウム (20%) 坩堝で熔融した。もちろん 6 成分系以上の多成分系も調べられるのであるが、そうした場合は表現が困難になることや、多成分系になることによる新しいものはほとんど現れず、かえって各成分の特長が平均化される効果が大きいなど、実際上の価値が少いと判断してやらなかった。ただガラス化という点だけから見れば、多成分系の方が安定化しやすい。

さて、硼酸と La_2O_3 を含む 4 成分系は、 TiO_2 以下 6 成分中より 2 つをとる組合せとなり、15 の 4 成分系ガラス化範囲がつくれる。しかしここには高屈折低分散

系の ZrO_2 , ThO_2 , Ta_2O_5 を含む系3つ (図-1~3 参照) だけ掲げることとする。また5成分系は前記の6成分中から3つをとる組合せとなり、20の5成分系ガラス化範囲がつくられる。しかしこれも紙面節約の意味で B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - ThO_2 - Ta_2O_5 系だけを掲げることとした (図-4 参照)。

図-1~3の4成分系ガラス化範囲では、図の重心が正四面体の頂点で B_2O_3 100% の点となり、太い実線はこの頂点と各底辺とからなる3成分系 (図中では2等辺3角形) 上のガラス化範囲、また細い実線と破線は B_2O_3 一定としたガラス化範囲で、10 mol% おきに実線、その中間を破線で示している。次に5成分系ガラス化範囲では上のような立体的表現でも足りないので、さらに La_2O_3 一定とした際の4成分系ガラス化範囲の幾つかによって表した。 La_2O_3 を一定にとったのはこれが共通成

分であることと、ガラス組成中の La_2O_3 の mol% がほぼ 10~30 と一定しているためである。なお4成分系のガラス化範囲を作るためには、相当量の熔融実験がなされたが、5成分系の場合は主として作図的に作られた。

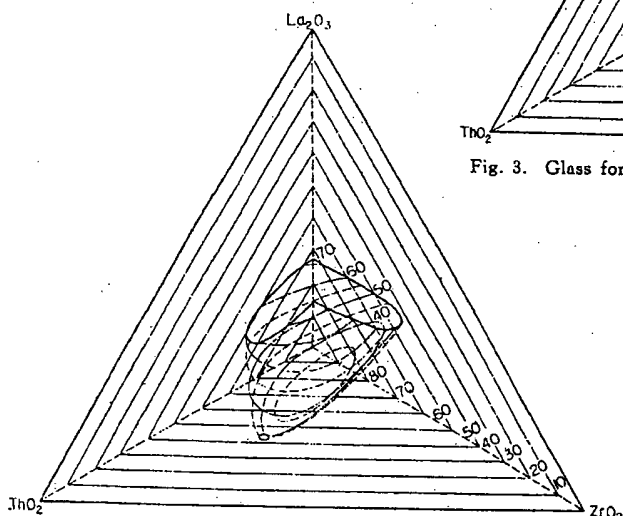


Fig. 1. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - ThO_2 system.

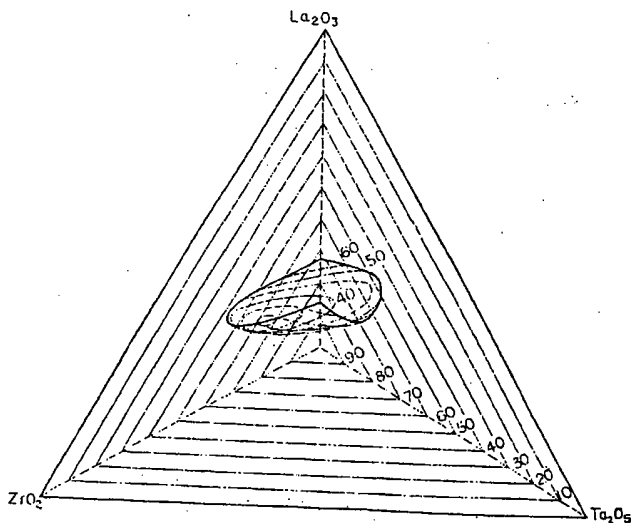


Fig. 2. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - Ta_2O_5 system.

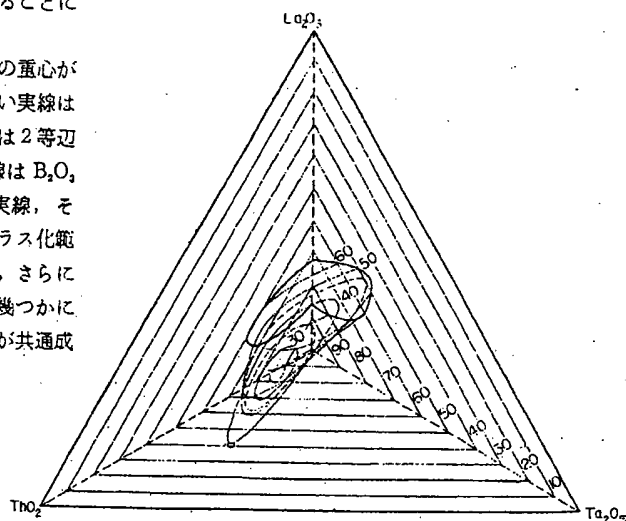


Fig. 3. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - ThO_2 - Ta_2O_5 system.

以上硼酸ランタン系の4~5成分系ガラス化範囲を調べていえることは、まず多成分系になるほど B_2O_3 の少ない側までガラス化範囲が広がる傾向のあることで、例えば TiO_2 , WO_3 系では3成分系の場合 B_2O_3 30 mol% 程度が限度であったのが、4成分系では20 mol% 附近、5成分系では15 mol% 以下にまで達しているもようである。同様な傾向は高ビスマス-鉛ガラス²⁾にもみられたが、多成分系の熔融体の融点についてもいえることである。一般に一定組成の結晶化合物を作らない限り、その中の各成分より低融点の部分が出て来る。すなわち多成分系の方が結晶しにくい、あるいは熔融した際のエントロピーの増加が大きいといえるだろう。

次に従来考えて来たような、ガラス化範囲をガラス化条件から予測してゆく問題³⁾が、3成分系からさらに多成分系に進んだ場合、どのような形ですすめられてゆくかということである。4成分系の例として B_2O_3 - La_2O_3 - TiO_2 - ZrO_2 及び B_2O_3 - La_2O_3 - TiO_2 - ThO_2 系をあげた。前者ではランタンが修飾イオン、残りの2つが網状構造イオンであるから、3成分系の際と同様な作図がなされ図-5となる。(b)は La_2O_3 -O 線に対して横からみた図であり、いずれも予定ガラス化範囲の中に実測結果がうまく入っているのがよく解る。

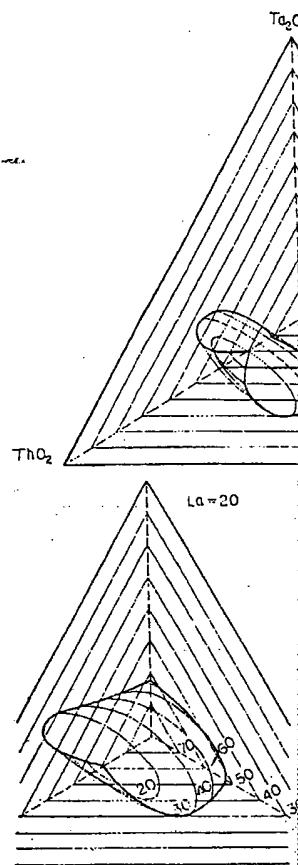


Fig. 4. Glass formation range of ThO_2 - Ta_2O_5 system.

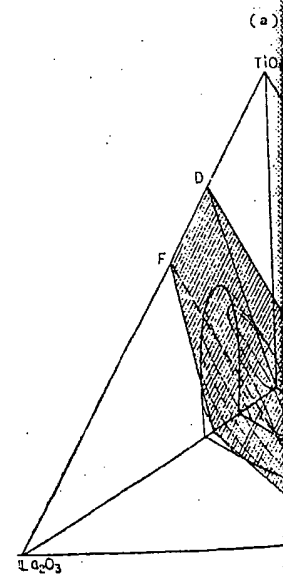
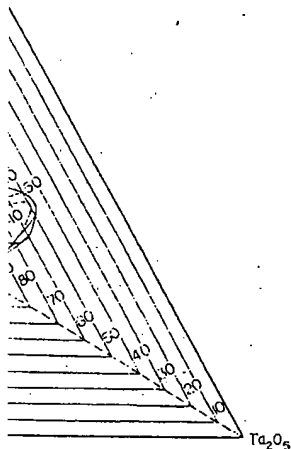


Fig. 5. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - TiO_2 system.

組成中の La_2O_3 の mol% がほ
るためである。なお 4 成分系
には、相当量の熔融実験がな
さは主として作図的に作られた。



$\text{B}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3\text{-Ta}_2\text{O}_5$ system.

ンタン系の 4~5 成分系ガラス
ていえることは、まず多成分系
 B_2O_3 の少ない側までガラス化範
句のあることで、例えば TiO_2 、
3 成分系の場合 B_2O_3 30 mol%
あったのが、4 成分系では 20
5 成分系では 15 mol% 以下に
るようである。同様な傾向は
ガラス²⁾にもみられたが、多成
分融点についてもいえることで
一定組成の結晶化合物を作らな
い各成分より低融点の部分が
うち多成分系の方が結晶しにく
溶融した際のエントロピーの増
えらるだろう。

して来たような、ガラス化範囲
から予測してゆく問題³⁾が、
さらに多成分系に進んだ場合、
2) すすめられてゆくかというこ
成分系の例として $\text{B}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3\text{-}$
び $\text{B}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-ThO}_2$ 系
ではランタンが修飾イオン、
網状構造イオンであるから、3
様な作図がなされ図-5 とな
 $\text{B}_2\text{O}_3\text{-O}$ 線に対して横からみた
れも予定ガラス化範囲の中に
く入っているのがよく解る。

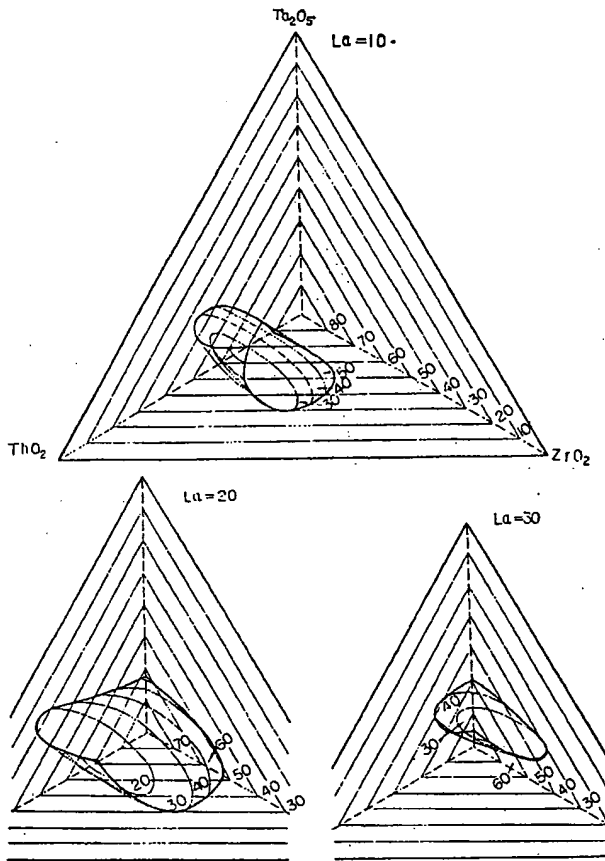


Fig. 4. Glass formation range of $\text{B}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2\text{-ThO}_2\text{-Ta}_2\text{O}_5$ system.

ガラス化部分の一番底 (B_2O_3 の最も少ない所)
の位置は、3 成分系における底の深さの比で
決まるようである。一方後者ではランタンと
トリウムが修飾イオン、チタンが網状構造イ
オンとみなせるが、従来 $\text{B}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-ThO}_2$ 3
成分系ではトリウムとチタンを対等に取り扱
ているので、チタンの性格が部分的に違っ
て来る。それは共存イオンによってその役割が
変わりうるとする従来の考えと矛盾しないこ
とであるが、実際の作図が困難であるので、
 $\text{B}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ 系もトリウム-チタンの
場合同様ランタン-チタンを対等と仮定して
作図した。それが図-6 で前者同様実測ガラ
ス化範囲は予定線の中にうまく入っている。
以上のようにガラス化条件からガラス化範囲
を予測する問題は 4 成分系の場合もほぼ 3 成
分系同様に取り扱えることが明らかにされた。
したがって 5 成分以上の多成分系も同様に取
扱えるわけであるが、作図が非常に面倒にな
るので実用性に乏しくなるうらみがあり、こ
こでは敢えて取上げなかった。

ガラス化範囲としては、この他にバリウム
とアルミニウムを含む系を若干調べた。バリ
ウムはランタンに次いで高屈折率を与える修
飾イオンであり、a 族高原子価元素の酸化物
とのガラス化範囲も、しばしばランタンより
広い点で注目される。しかし結果的には、ラ
ンタンをバリウムで置換することによって網
状構造成分はそれほど増えず、かえって修飾

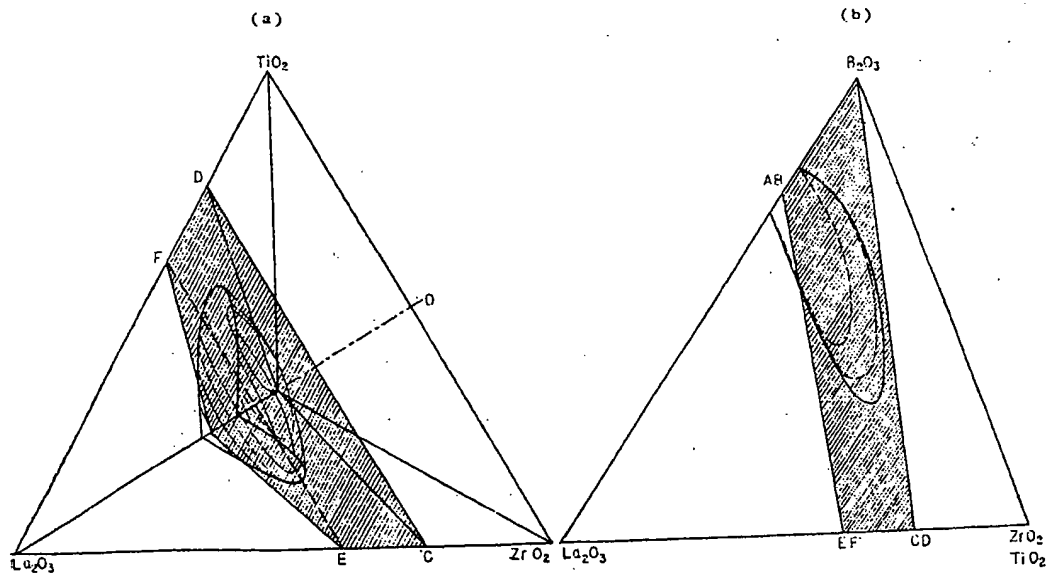


Fig. 5. Comparison between theoretical and experimental glass formation range in $\text{B}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-ZrO}_2$ system.

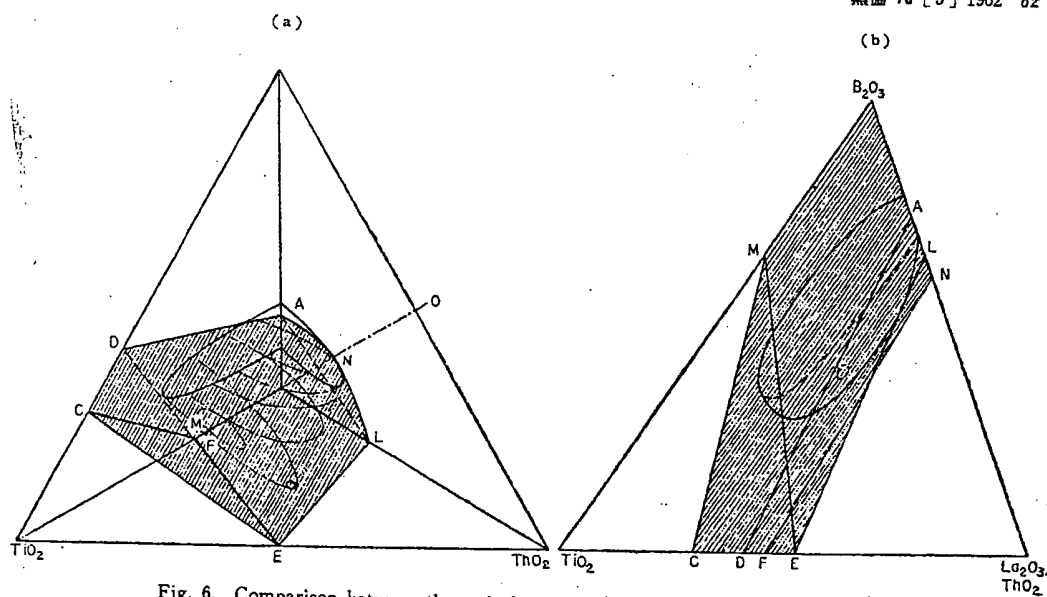


Fig. 6. Comparison between theoretical and experimental glass formation range in B_2O_3 - La_2O_3 - TiO_2 - ThO_2 system.

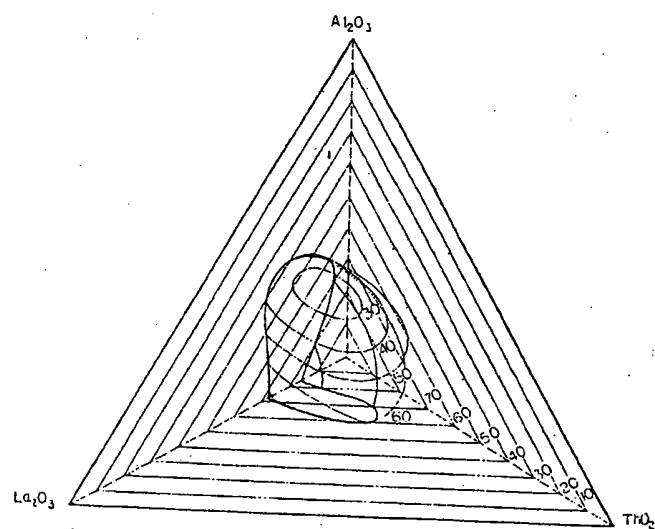


Fig. 7. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - Al_2O_3 - ThO_2 system.

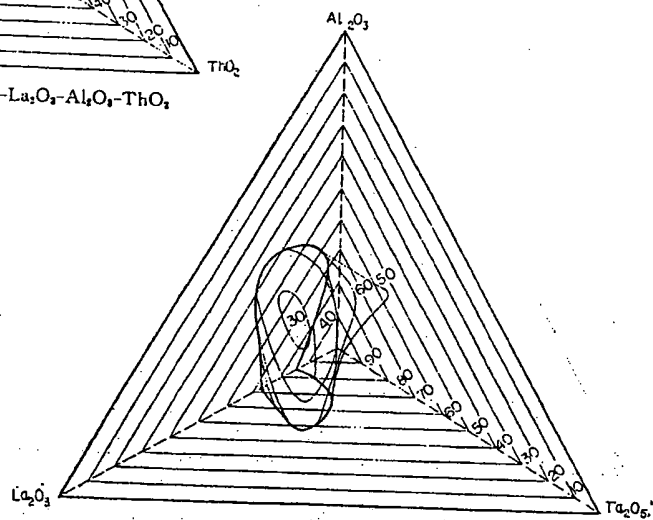


Fig. 8. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - Al_2O_3 - Ta_2O_5 system.

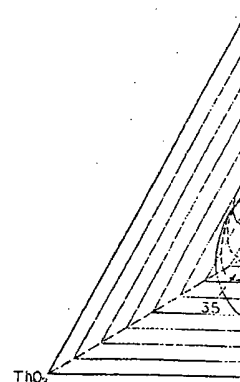


Fig. 9. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - ThO_2 system.

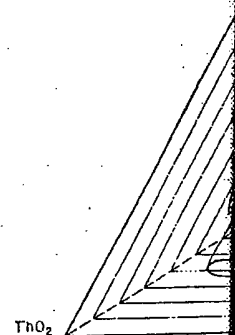
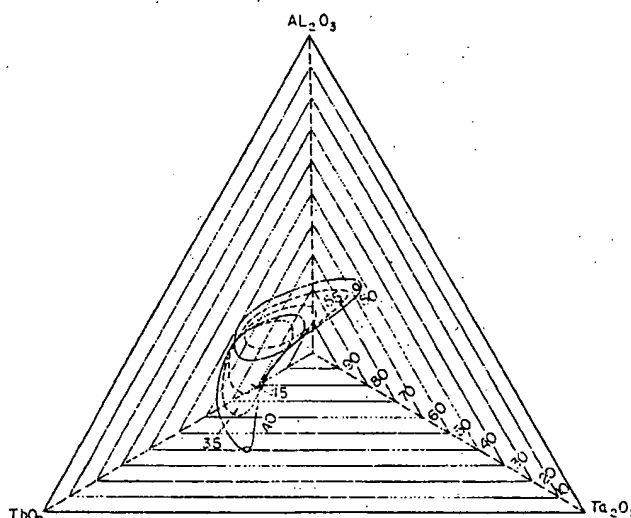
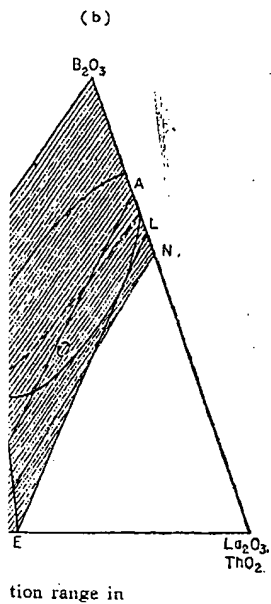
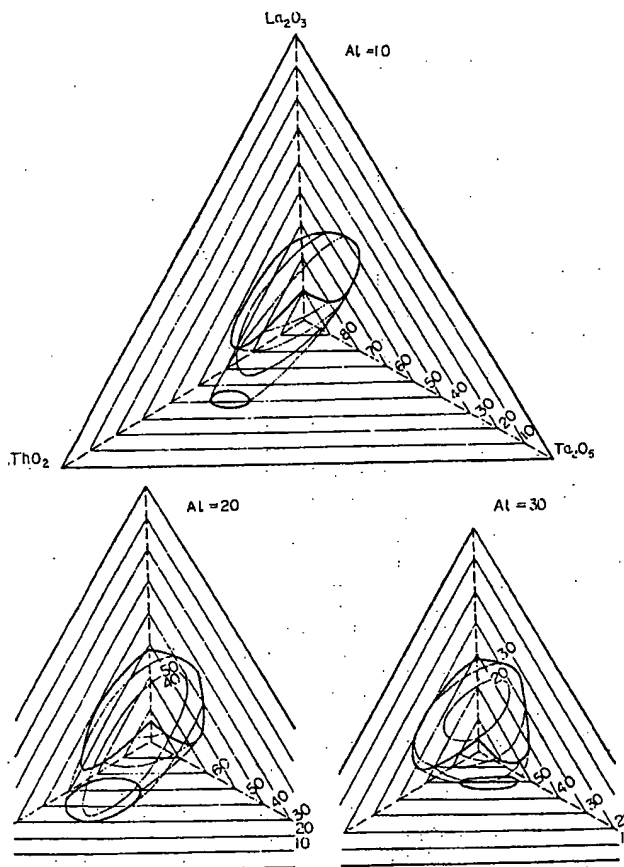


Fig. 10. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - Al_2O_3 - Ta_2O_5 system.


 Fig. 9. Glass formation range of B_2O_3 - Al_2O_3 - ThO_2 - Ta_2O_5 system.

 Fig. 10. Glass formation range of B_2O_3 - La_2O_3 - Al_2O_3 - ThO_2 - Ta_2O_5 system.

成分は $2La+Ba$ で計算すると減少しており、期待に反するものであった。一方アルミニウムの方は、光学的性質に関してはほとんど影響なく、むしろ修飾イオンをとってガラスに入るので修飾成分の増加が期待された。ただその際 Al_2O_3 が多くなると熔融しにくく、結晶しやすくなる欠点がある。 Al_2O_3 、 ThO_2 、 Ta_2O_5 を含む硼酸ランタン系の 4 および 5 成分系ガラス化範囲を図-7~10 に示した。

III. 実験結果と屈折率, Abbe 数に関する成分因子

測定試料は別報¹⁾と同様頂角 60° のプリズムに作り、ナトリウムランプと水素放電管を光源とし、分光計を使って n_D , n_C , n_F を測定し、また Abbe 数を計算した。ガラスは各成分系について 2~5 個、全体で 100 個の測定試料を作った。その中にはやや着色が著しく n_F の測定が出来なかったものもあり、それらについては ν の値を欠いている。これらの測定結果については表-1 に示した。

さて、組成と屈折率ならびに Abbe 数との関係は別報¹⁾に述べたように

$$n_D = 1.455 + \sum_i a_i x_i + \sum_j b_j x_j^2 \dots (1)$$

$$\nu = (n_D - 1) / (0.521 + \sum_i k_i x_i) \cdot n_D \quad (2)$$

ただし a_i , b_i , k_i および x_i は $M_{in}O_m$ 成分の成分因子および mol. 分率, で与えられる。なおこの a , b , k の値も別報¹⁾にすでに与えられているが、タンタル, ニオブ, トリウムなどを含むランタン系では、上の式で計算した値よりやや小さい屈折率を示す傾向がある。これはタンタルなど加えられた成分の mol. 百分率だけでなく、 La_2O_3 の mol. 百分率にも関係すると思われるが、多成分系で余り複雑な式では使えないので、成分因子の値を多少変更するだけで間に合わせた。すなわち La_2O_3 20~30 mol% 附近の平均値をとり、従来の成分因子にかえてランタン系の成分因子とした。屈折率の成分因子の変化にともなって Abbe 数の方も変わるわけで、これらの値は表-2 にかかげた。なおアルミニウムも本来共存修飾イオンによっていろいろ影響を受けるが、ランタン系では屈折率, Abbe 数ともアルミニウムの成分因子をゼロと置いた。

次に実測値と前記 (1) と (2) の式から、表の成分因子によって計算した値とを比較してみると、表-1 にみるように非常によいと

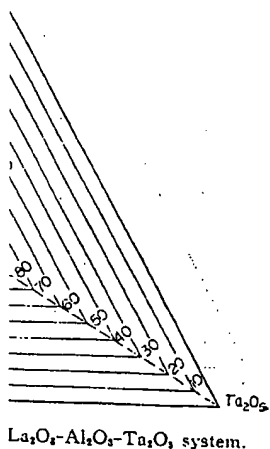


Table 1. Calculated and experimental value of n_D and ν of glasses.

Composition (mol%)				n_D			ν		
B ₂ O ₃	La ₂ O ₃	TiO ₂	ZrO ₂	Cal.	Exp.	Dif.	Cal.	Exp.	Dif.
47.9	21.7	8.7	21.7	1.851	1.8510	0.000	37.2	—	—
40.0	25.0	20.0	15.0	1.921	1.9135	0.007	31.0	32.0	-1.0
40.8	22.8	18.2	18.2	1.908	1.8982	0.010	31.7	31.5	0.2
35.0	20.0	30.0	15.0	1.950	1.9443	0.006	27.0	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ThO ₂									
60.0	25.0	10.0	5.0	1.825	1.8183	0.007	40.0	41.5	-1.5
50.0	10.0	20.0	20.0	1.848	1.8556	-0.008	35.0	34.4	0.6
50.0	15.0	25.0	10.0	1.874	1.8737	0.000	30.2	30.1	0.1
40.0	15.0	35.0	10.0	1.940	1.9489	-0.009	26.4	27.0	-0.6
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ Nb ₂ O ₅									
38.0	23.8	19.1	19.0	2.036	2.0167	0.019	24.2	25.2	-1.0
39.1	21.7	26.1	13.1	2.007	2.0109	-0.004	25.0	24.3	0.7
30.0	25.0	20.0	25.0	2.108	2.0796	0.028	21.5	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ Ta ₂ O ₅									
36.4	22.7	31.8	9.1	1.998	1.9891	0.009	25.2	—	—
40.0	25.0	25.0	10.0	1.977	1.9707	0.006	27.2	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ WO ₃									
40.0	25.0	10.0	25.0	1.901	1.9051	-0.005	31.3	—	—
40.0	25.0	25.0	10.0	1.936	1.9402	-0.006	28.3	—	—
40.8	22.8	9.1	27.3	1.890	1.8852	0.005	31.4	31.9	-0.5
32.6	20.7	31.1	15.6	1.970	1.9731	-0.003	25.2	25.8	-0.6
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ ThO ₂									
45.0	10.0	20.0	25.0	1.816	1.8178	-0.002	43.1	43.8	-0.7
40.0	10.0	20.0	30.0	1.844	1.8439	0.000	42.1	41.2	0.9
47.8	14.3	19.1	23.8	1.840	1.8488	-0.009	42.5	41.9	0.6
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ Nb ₂ O ₅									
45.5	27.3	13.6	13.6	1.931	1.9215	0.009	31.6	—	—
45.4	27.3	18.2	9.1	1.906	1.9078	-0.002	34.3	35.3	-1.0
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ Ta ₂ O ₅									
50.0	25.0	15.0	10.0	1.873	1.8720	0.001	38.8	39.4	-0.6
40.0	25.0	25.0	10.0	1.913	1.9082	0.005	36.6	37.3	-0.7
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ WO ₃									
40.0	25.0	15.0	20.0	1.874	1.8694	0.005	36.6	36.4	0.2
35.0	25.0	15.0	25.0	1.895	1.8898	0.005	34.8	33.4	1.4
33.3	23.8	14.3	28.6	1.899	1.8950	0.004	33.9	34.0	-0.1
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ThO ₂ Nb ₂ O ₅									
40.0	15.0	30.0	15.0	1.967	1.9710	-0.004	31.3	31.2	0.1
45.0	20.0	20.0	15.0	1.955	1.9466	0.008	31.8	32.5	0.7
46.4	22.3	17.9	13.4	1.946	1.9414	0.005	33.0	34.1	1.1
42.1	10.5	31.6	15.8	1.936	1.9430	-0.007	30.8	31.0	-0.2
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ThO ₂ Ta ₂ O ₅									
60.0	20.0	10.0	10.0	1.823	1.8172	0.006	41.5	40.8	0.7
50.0	25.0	10.0	15.0	1.902	1.8905	0.011	37.2	38.7	-1.5
66.7	16.6	11.1	5.6	1.772	1.7797	-0.008	46.2	45.2	1.0
50.0	20.0	20.0	10.0	1.890	1.8891	0.001	40.0	40.7	-0.7
36.3	18.2	27.3	18.2	1.985	1.9723	0.013	34.4	35.6	-1.2
60.0	20.0	15.0	5.0	1.821	1.8012	0.020	45.1	45.7	-0.6
50.0	25.0	15.0	10.0	1.899	1.8889	0.010	41.0	41.1	-0.1
50.0	20.0	15.0	15.0	1.903	1.8979	0.005	37.4	37.7	-0.3
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ThO ₂ WO ₃									
40.0	20.0	10.0	30.0	1.876	1.8755	0.000	35.4	34.8	0.6
30.0	20.0	20.0	30.0	1.933	1.9314	0.002	34.2	33.9	0.3
40.0	15.0	20.0	25.0	1.886	1.8905	-0.005	35.8	35.6	0.2
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ Nb ₂ O ₅ Ta ₂ O ₅									
45.0	30.0	10.0	15.0	1.981	1.9594	0.022	29.7	—	—
50.0	30.0	10.0	10.0	1.939	1.9253	0.014	31.6	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ Nb ₂ O ₅ WO ₃									
30.0	25.0	15.0	30.0	2.004	1.9976	0.006	26.0	27.0	-1.0
40.0	25.0	15.0	20.0	1.962	1.9555	0.006	28.0	28.5	-0.5
30.0	25.0	20.0	25.0	2.023	2.0019	0.021	24.8	25.2	-0.4
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ Ta ₂ O ₅ WO ₃									
40.0	25.0	10.0	25.0	1.918	1.9241	-0.006	32.5	33.2	-0.7
42.8	28.6	14.3	14.3	1.929	1.9289	0.000	33.2	—	—
36.4	28.6	9.5	25.5	1.936	1.9441	-0.008	32.0	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ThO ₂ Al ₂ O ₃									
55.0	15.0	20.0	10.0	1.762	1.7698	-0.008	50.6	50.6	0.0
55.0	20.0	15.0	10.0	1.779	1.7760	0.003	50.8	51.1	-0.3

60.0 15.0 20.0 5.0 1.762 1.7665 -0.005 50.6 51.8 -0.2
 55.0 10.0 25.0 10.0 1.750 1.7542 -0.004 49.2 49.9 -0.7

Composition (mol %)				n _D			ν			
B ₂ O ₃	La ₂ O ₃	TiO ₂	ZrO ₂	Th ₂ O ₃	Cal.	Exp.	Dif.	Cal.	Exp.	Dif.
30.0	20.0	30.0	10.0	10.0	1.987	1.9921	-0.005	27.0	26.7	0.3
33.2	19.1	19.1	14.3	14.3	1.949	1.9560	-0.007	30.9	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ZrO ₂ Nb ₂ O ₅										
30.0	20.0	30.0	15.0	5.0	1.999	1.9904	0.009	33.5	—	—
30.0	20.0	30.0	5.0	15.0	2.058	2.0574	0.001	22.0	—	—
30.0	30.0	10.0	10.0	20.0	2.060	2.0315	0.028	24.5	26.6	-2.1
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ZrO ₂ Ta ₂ O ₅										
35.0	25.0	10.0	15.0	15.0	1.981	1.9596	0.021	29.5	31.5	-2.0
30.0	30.0	20.0	5.0	15.0	2.033	1.9989	0.034	26.7	28.3	-1.6
35.0	20.0	25.0	15.0	5.0	1.959	1.9533	0.006	27.4	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ZrO ₂ WO ₃										
30.0	20.0	25.0	10.0	15.0	1.960	1.9527	0.007	26.5	—	—
30.0	30.0	5.0	10.0	25.0	1.935	1.9233	0.012	31.9	33.0	-1.1
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ThO ₂ Nb ₂ O ₅										
36.4	18.2	9.0	18.2	18.2	2.020	2.0150	0.005	26.4	—	—
33.4	19.0	19.0	14.3	14.3	2.032	2.0216	0.010	25.1	24.9	0.2
33.4	19.0	28.6	9.5	9.5	2.020	2.0222	-0.002	24.3	24.1	0.2
33.3	22.2	16.7	5.6	22.2	2.070	2.0447	0.025	23.0	25.8	-2.8
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ThO ₂ Ta ₂ O ₅										
30.0	10.0	20.0	30.0	10.0	2.026	2.0240	0.002	26.7	27.3	-0.6
36.3	18.2	27.3	9.1	9.1	1.988	1.9835	0.004	26.5	26.4	0.1
33.3	19.1	9.5	23.8	14.3	2.003	1.9968	0.006	31.2	—	—
27.3	18.2	18.2	22.7	13.6	2.040	2.0369	0.003	28.1	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ ThO ₂ WO ₃										
26.4	21.0	31.6	10.5	10.5	2.012	2.0089	0.003	25.4	—	—
26.4	21.0	16.8	15.8	21.0	1.982	1.9802	0.002	28.8	29.5	-0.7
30.0	20.0	10.0	20.0	20.0	1.967	1.9650	0.002	31.4	31.3	0.1
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ Nb ₂ O ₅ Ta ₂ O ₅										
34.3	18.8	28.2	14.1	4.6	2.047	2.0377	0.009	21.6	—	—
36.4	27.3	22.7	4.5	9.1	2.012	2.0078	0.004	25.9	26.3	-0.4
36.4	27.3	13.6	18.2	4.5	2.049	2.0290	0.020	24.2	26.9	-2.7
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ Nb ₂ O ₅ WO ₃										
30.0	20.0	20.0	20.0	10.0	2.063	2.0632	0.000	22.7	—	—
27.3	27.3	9.0	18.2	18.2	2.026	2.0390	0.022	23.7	—	—
33.3	28.6	14.3	14.3	9.5	2.051	2.0175	0.007	24.7	25.9	-1.2
33.3	19.1	28.6	9.5	9.5	2.007	2.0072	0.000	23.2	23.2	0.0
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ TiO ₂ Ta ₂ O ₅ WO ₃										
28.6	28.6	9.5	14.3	19.0	2.011	2.0067	0.004	25.0	—	—
34.8	26.1	17.4	13.0	8.7	1.996	1.9883	0.008	27.4	—	—
33.2	19.1	23.8	4.8	19.1	1.961	1.9647	0.004	25.8	26.4	-0.6
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ ThO ₂ Nb ₂ O ₅										
39.1	17.4	21.7	17.4	4.4	1.900	1.8854	0.005	38.8	—	—
36.4	18.2	13.6	22.7	9.1	1.951	1.9431	0.008	34.2	35.2	-1.0
30.0	10.0	15.0	35.0	10.0	1.950	1.9499	0.000	32.5	32.9	-0.4
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ ThO ₂ Ta ₂ O ₅										
39.1	26.1	13.0	4.4	17.4	1.958	1.9470	0.011	31.9	—	—
33.5	19.0	19.0	19.0	9.5	1.948	1.9441	0.004	36.5	38.0	-1.5
30.5	17.4	13.0	26.1	13.0	1.980	1.9720	0.008	35.0	35.5	-0.5
36.4	18.2	9.1	22.7	13.6	1.956	1.9517	0.004	35.8	36.2	-0.4
33.3	9.5	14.4	33.3	9.5	1.913	1.9187	-0.006	37.1	37.5	-0.4
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ ThO ₂ WO ₃										
31.8	18.2	13.6	18.2	18.2	1.912	1.9165	-0.005	36.2	38.0	-1.8
30.0	10.0	20.0	30.0	10.0	1.886	1.8833	0.003	37.4	38.3	-0.9
30.0	10.0	5.0	25.0	30.0	1.882	1.8900	-0.008	39.2	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ Nb ₂ O ₅ Ta ₂ O ₅										
36.4	27.3	9.1	13.6	13.6	2.026	1.9991	0.027	27.4	28.1	-0.7
26.1	26.1	17.4	8.7	8.7	1.965	1.9665	-0.002	31.2	32.1	-0.9
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ Nb ₂ O ₅ WO ₃										
20.0	30.0	10.0	15.0	25.0	2.050	2.0396	0.010	25.7	26.2	-0.5
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ZrO ₂ Ta ₂ O ₅ WO ₃										
23.8	28.6	14.3	14.3	19.0	2.006	1.9963	0.010	30.6	30.1	0.5
36.1	27.2	9.1	18.2	9.1	1.968	1.9571	0.011	31.8	—	—
27.3	27.2	13.6	13.6	18.2	1.987	1.9813	0.006	30.7	30.7	0.0
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ThO ₂ Nb ₂ O ₅ Ta ₂ O ₅										
30.0	10.0	35.0	15.0	10.0	2.024	2.0040	0.020	27.6	27.6	0.0
33.3	19.0	28.6	4.8	14.3	2.014	2.0029	0.011	32.4	—	—
B ₂ O ₃ La ₂ O ₃ ThO ₂ Nb ₂ O ₅ WO ₃										
30.0	10.0	30.0	15.0	15.0	1.975	1.9854	-0.010	27.9	28.4	-0.5

1.7665 -0.005 50.6 51.8 -0.2
1.7542 -0.004 49.2 49.9 -0.7

n_D
1. Exp. Dif. Cal. Exp. Dif.
17 1.9921 -0.005 27.0 26.7 0.3
19 1.9560 -0.007 30.9 — —

19 1.9904 0.009 33.5 — —
18 2.0574 0.001 22.0 — —
10 2.0315 0.028 24.5 26.6 -2.1

11 1.9596 0.021 29.5 31.5 -2.0
13 1.9989 0.034 26.7 28.3 -1.6
9 1.9533 0.006 27.4 — —

0 1.9527 0.007 26.5 — —
5 1.9233 0.012 31.9 33.0 -1.1

0 2.0150 0.005 26.4 — —
2 2.0216 0.010 25.1 24.9 0.2
0 2.0222 -0.002 24.3 24.1 0.2
0 2.0447 0.025 23.0 25.8 -2.8

6 2.0240 0.002 26.7 27.3 -0.6
8 1.9835 0.004 26.5 26.4 0.1
3 1.9968 0.006 31.2 — —
0 2.0369 0.003 28.1 — —

2 2.0089 0.003 25.4 — —
2 1.9802 0.002 28.8 29.5 -0.7
7 1.9650 0.002 31.4 31.3 0.1

7 2.0377 0.009 21.6 — —
2 2.0078 0.004 25.9 26.3 -0.4
3 2.0290 0.020 24.2 26.9 -2.7

3 2.0632 0.000 22.7 — —
1 2.0390 0.022 23.7 — —
5 2.0175 0.007 24.7 25.9 -1.2
7 2.0072 0.000 23.2 23.2 0.0

1 2.0067 0.004 25.0 — —
1 1.9883 0.008 27.4 — —
1 1.9647 0.004 25.8 26.4 -0.6

1 1.8954 0.005 38.8 — —
1 1.9431 0.008 34.2 35.2 -1.0
1 1.9499 0.000 32.5 32.9 -0.4

1 1.9470 0.011 31.9 — —
1 1.9441 0.004 36.5 38.0 -1.5
1 1.9720 0.008 35.0 35.5 -0.5
1 1.9517 0.004 35.8 36.2 -0.4
1 1.9187 -0.006 37.1 37.5 -0.4

1.9165 -0.005 36.2 38.0 -1.8
1.8833 0.003 37.4 38.3 -0.9
1.8900 -0.008 39.2 — —

1.9991 0.027 27.4 28.1 -0.7
1.9665 -0.002 31.2 32.1 -0.9

2.0396 0.010 25.7 26.2 -0.5

1.9963 0.010 30.6 30.1 0.5
1.9571 0.011 31.8 — —
1.9813 0.006 30.7 30.7 0.0

2.0040 0.020 27.6 27.6 0.0
2.0029 0.011 32.4 — —

1.9854 -0.010 27.9 28.4 -0.5

28.6 19.0 19.0 4.5 28.6 1.960 1.9598 0.000 31.2 31.9 -0.7
28.6 19.0 23.8 14.3 14.3 2.022 2.0168 0.005 28.5 28.6 -0.1
 B_2O_3 , La_2O_3 , ThO_2 , Ta_2O_5 , WO_3
27.3 18.2 27.3 13.6 13.6 2.003 1.9958 0.007 32.4 31.7 0.7
 B_2O_3 , La_2O_3 , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 , WO_3
39.2 26.1 8.7 13.0 13.0 1.986 1.9684 0.018 28.7 30.2 -1.5
30.0 30.0 10.0 5.0 25.0 2.003 1.9963 0.007 27.4 — —
 B_2O_3 , La_2O_3 , TiO_2 , ThO_2 , Al_2O_3
50.0 15.0 10.0 20.0 5.0 1.828 1.8247 0.003 39.0 — —
 B_2O_3 , La_2O_3 , ZrO_2 , Ta_2O_5 , Al_2O_3
30.0 25.0 15.0 10.0 20.0 1.873 1.8653 0.008 38.8 40.1 -1.3
40.0 25.0 15.0 10.0 10.0 1.873 1.8688 0.004 38.8 39.3 -0.5
 B_2O_3 , La_2O_3 , ThO_2 , Ta_2O_5 , Al_2O_3
30.0 20.0 15.0 15.0 20.0 1.904 1.8971 0.007 37.4 37.2 0.2
33.3 23.8 9.5 14.3 19.1 1.895 1.8933 0.002 37.6 38.5 -0.9

Table 2. Component factors of La_2O_3 contained glasses.

	a	b	k
La_2O_3	1.562	0.185	0.107
TiO_2	0.655	—	0.306
ZrO_2	0.400	—	0.100
ThO_2	0.570	—	0.086
Nb_2O_5	0.987	—	0.421
Ta_2O_5	0.833	—	0.269
WO_3	0.420	—	0.168
Al_2O_3	0.000	—	0.000

Table 3. Comparison between experimental data by Izumitani and our calculations.

	Composition (wt. %)				n_D	Dif.	ν	Dif.
	B_2O_3	La_2O_3	Ta_2O_5	ZrO_2	(Exp. Cal.)		(Exp. Cal.)	
(1)	20	45	30	5	1.8760	0.003	39.4	1.6
	53.5	25.7	13.2	7.6	1.873		37.8	
(2)	20	50	25	5	1.8737	0.005	40.7	1.8
	53.1	28.4	10.9	7.6	1.869		38.9	
(3)	20	45	25	10	1.8767	0.009	—	—
	50.9	24.4	10.4	14.3	1.868		—	—
(4)	25	45	25	5	1.8349	0.010	41.6	0.6
	60.1	23.1	9.9	6.9	1.825		41.0	
(5)	30	50	15	5	1.7997	0.014	45.7	0.8
	65.2	23.1	5.5	6.9	1.786		44.9	
	B_2O_3	La_2O_3	Ta_2O_5	ThO_2				
(6)	20	40	35	5	1.8699	—	—	—
	56.5	24.3	15.5	3.7	1.876	-0.006	38.0	
(7)	20	35	15	30	1.8631	—	—	—
	53.0	20.9	6.3	19.8	1.871	-0.008	43.0	
(8)	20	40	20	20	1.8637	—	42.2	0.7
	54.0	23.2	6.5	14.3	1.870	-0.006	41.5	
(9)	19	46	25	10	1.8744	-0.007	41.4	2.0
	53.4	27.7	11.5	7.5	1.8615		39.4	
(10)	18	45	30	7	1.8862	—	—	—
	52.2	27.9	14.4	5.5	1.8965	-0.010	—	
(11)	18	37	25	20	1.8834	—	40.9	1.7
	50.9	22.6	11.0	14.9	1.892	-0.009	39.2	

はいえないが、 n_D に関してはほぼ 0.01 以下、 ν に関しては 1 以下の値で両者は一致している。しかし上述のように成分因子を簡単化するため ϵ の 2 乗の項を省略したので、その影響があると思われるタンタルやニオブの系で、とくにそれらの合計が 20 mol% を超えた場合など、その差はやや目立っている。これらの点をもう少し精度のよいものにしてゆくためには、試料ガラスの脈理を除きあるいは研磨の精度を上げ、組成の分析を行うなど、全面的に精度の向上をはかる必要がある。なお念のためこの計算を他の文献中でデータ¹¹⁾について当ててみた。しかし従来のものは特許のデータであるためか、組成と屈折率との相対関係が一見しておかしいものもあって、信頼度の低いことが明らかになったので、研究論

文として発表されている泉谷のデータ¹¹⁾によって検討した。その結果は表-3 にかかげたが、ほぼ一定の傾向をもってかなりよく一致している。これは泉谷の組成が調合組成である点を考慮すれば、十分な裏付けを与えたものと解してよいのではなかろうか。

IV. 硼酸ランタン系ガラスの光学的領域

以上の検討の結果、実測値と計算値はほぼ一致することが明らかになったので、前記の組成と屈折率ならびに Abbe 数との間の関係式 (1) および (2) は表-2 の成分因子の値を使って広範囲にわたるこの系のガラスについて、その組成から光学的性質を算出しようものと考えられ、初めにあげたガラス化範囲の結果と合せて、 n_D - ν

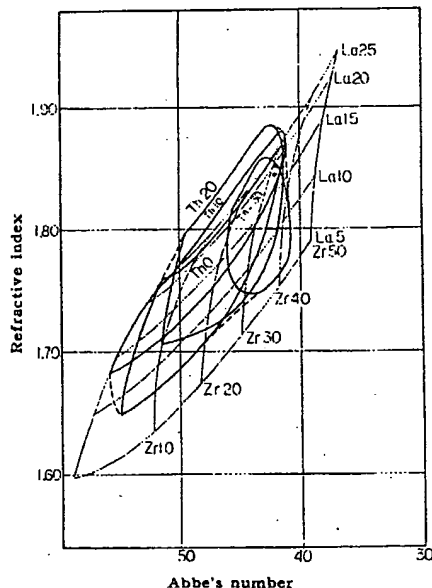


Fig. 11. Optical region of B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - ThO_2 system.

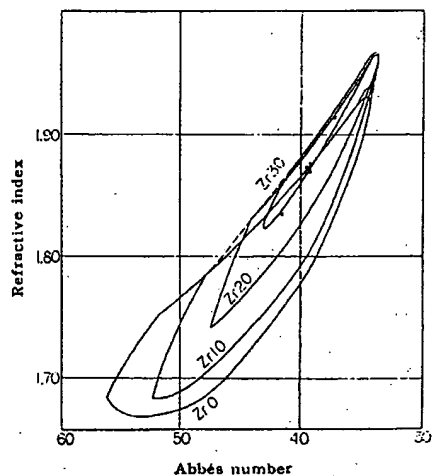
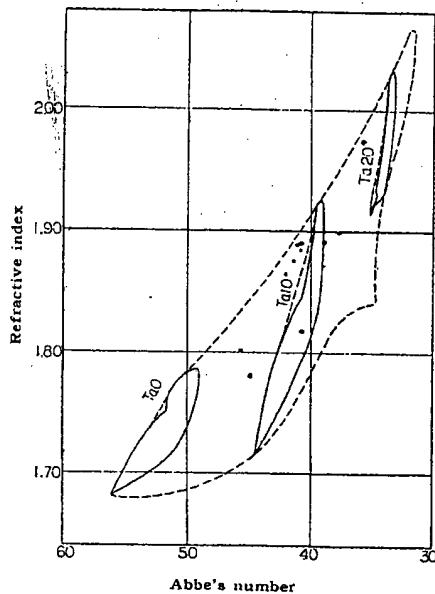
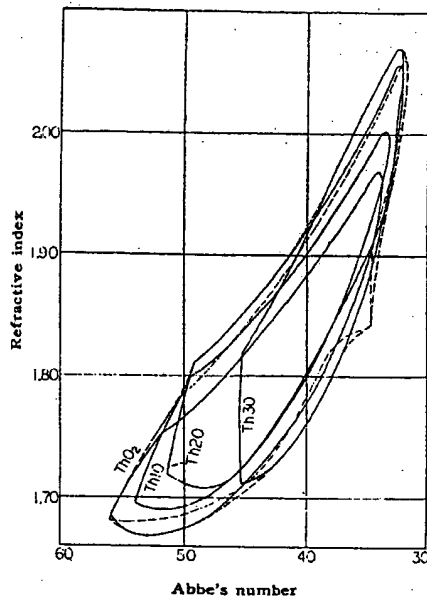
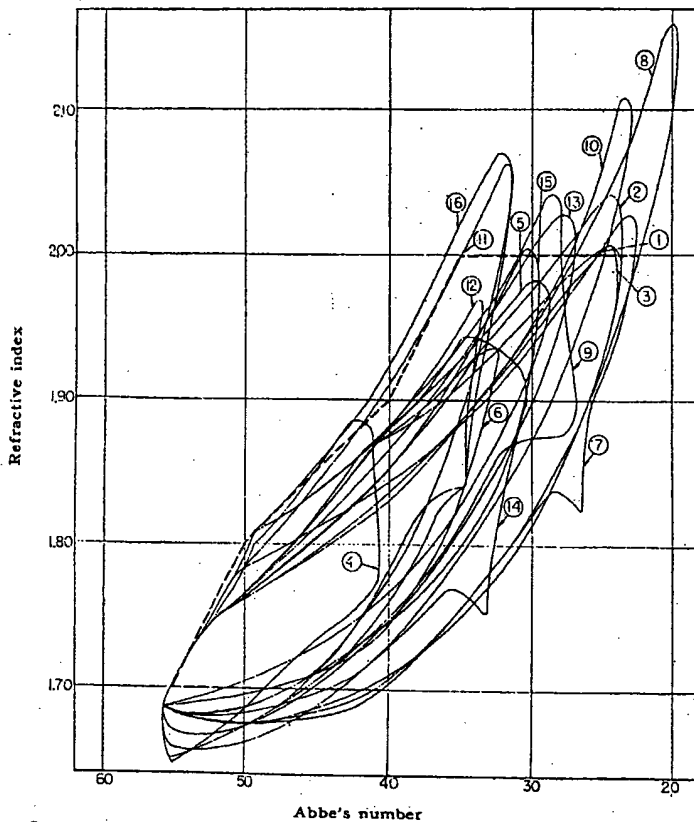


Fig. 12. Optical region of B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - Ta_2O_5 system.

Fig. 13. Optical region of B_2O_3 - La_2O_3 - ThO_2 - Ta_2O_5 system.Fig. 14. Optical region of B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - ThO_2 - Ta_2O_5 system.

図表中における硼酸ランタン系ガラスの光学領域を求めてみた。

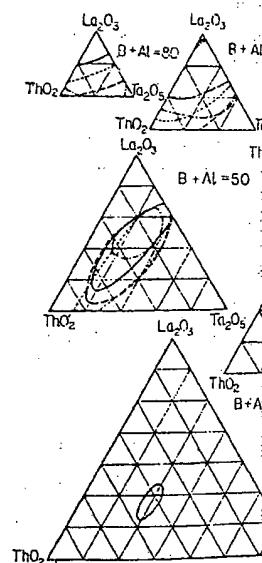
その結果ガラス化範囲の場合と同様、4成分系について15、5成分系について20の n_D - ν 図が得られるが、ここにはただ ZrO_2 、 ThO_2 、 Ta_2O_5 を含む4および5成分系の結果を掲げるとどめる(図-11~14参照)。一例として B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - ThO_2 系(図-11)についてみると、まず細い実線は La_2O_3 または ZrO_2 の量のみを変化させていった場合の n_D と ν との関係で、図中の Zr 10, 20, 30, ……という点は、 La_2O_3 5 mol%, ZrO_2 10, 20, 30, ……mol% (残りは B_2O_3)の組成のガラスの n_D と ν を示す。したがってこれは形がゆがんでいるが3形座標を n_D - ν 図表中に写したもので(B_2O_3 一定の線だけ書いてない)、この中にガラス化範囲を書込んでゆけば求める系の光学領域が画かれる。すなわち太い実線の ThO がそれである。ここでまず得られたのは B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 3成分系である。次に ThO 10 mol% 入った系を考え、同様な手続きで求めてゆくと Th 10の太い実線が得られる。同様に Th 20, Th 30 を求め、最後にそれら全体

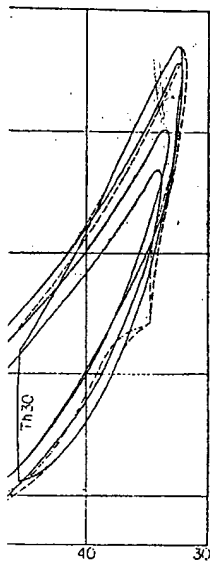


① ZrO_2 - TiO_2 system ② Ta_2O_5 - TiO_2 system ③ WO_3 - TiO_2 system ④ ThO_2 - ZrO_2 system ⑤ Nb_2O_5 - ZrO_2 system ⑥ WO_3 - ZrO_2 system ⑦ TiO_2 - ThO_2 system ⑧ Ta_2O_5 - ThO_2 system ⑨ TiO_2 - Nb_2O_5 system ⑩ ThO_2 - Nb_2O_5 system ⑪ WO_3 - Nb_2O_5 system ⑫ ZrO_2 - Ta_2O_5 system ⑬ Nb_2O_5 - Ta_2O_5 system ⑭ ThO_2 - WO_3 system ⑮ Ta_2O_5 - WO_3 system ⑯ ZrO_2 - ThO_2 - Ta_2O_5 system

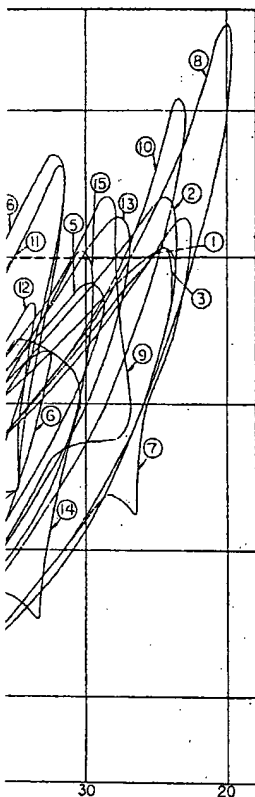
Fig. 15. Optical region of all tetracomponent systems.

を包括すると(破線でつなぐ) 4成分系の光学領域が出来上がる。この n_D と ν の値は、すべて域に入ってしまう。次に5成分系も全く同様である。ただ以上の成分系(B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - ThO_2 系)のものは Ta_2O_5 を、さらに ThO_2 と同じ手続きで作り、それを作るから、手数は2乗されてくる。違い、 B_2O_3 - La_2O_3 - ZrO_2 - Ta_2O_5 系。しかし図中の点線は B_2O_3 - La_2O_3 系だが、4成分から5成分系になると広がっていないことが解る。系の光学領域を全部一つにまとめたこの系のガラスの光学的限界・低分散側の境界線は、ほぼ 1.80 , $\nu=50$; $n_D=1.90$, $\nu=40$ 点をつないだ線で示され、およそ来る。以上はガラス化範囲が融量の問題もあるので、実用的に内側に入ることは当然で、いすの可能な境界線というべきで、なおこの議論が4成分だけあるいはそれ以上の多成分系を、前述のように4成分系と5成分系に大差ないからで(5成分 ThO_2 - Ta_2O_5 系は最も高屈折率), さらに多成分系にもって Zr などの特長が、 a/k の小さい

Fig. 16. Glass formation in Al_2O_3 - ThO_2 - Ta_2O_5 system.



number
if $B_2O_3-La_2O_3-ZrO_2-ThO_2-$



WO_3-TiO_2 system ① ThO_2-
system ② TiO_2-ThO_2 sys-
tem ③ $ThO_2-Nb_2O_5$ system
 $B_2O_3-Ta_2O_5$ system ④ ThO_2-
 Ta_2O_5 system
component systems.

を包括すると(破線でつなぐ) $B_2O_3-La_2O_3-ZrO_2-ThO_2$ 4成分系の光学的領域が出来上がる。すなわちこの系のガラスの n_D と ν の値は、すべて $n_D-\nu$ 図表上のこの領域に入ってしまう。次に5成分系の場合であるが、これも全く同様である。ただ以上のようにして得られる4成分系 ($B_2O_3-La_2O_3-ZrO_2-ThO_2-Ta_2O_5$ 系であれば、上記のものは Ta_2O_5 を、さらに Ta_2O_5 10 mol, 20 mol% と同じ手続きで作り、それを1つに包括するわけであるから、手数は2乗されてくる(図-14は作図の順序が違い、 $B_2O_3-La_2O_3-ZrO_2-Ta_2O_5$ 系から出発している)。しかし図中の点線は $B_2O_3-La_2O_3-ThO_2-Ta_2O_5$ 系であるが、4成分から5成分系になっても光学的領域はほとんど広がっていないことが解る。なお図-15は4成分系の光学的領域を全部一つにまとめたもので、これによってこの系のガラスの光学的境界が明らかになる。高屈折・低分散側の境界線は、ほぼ $n_D=1.70, \nu=55; n_D=1.80, \nu=50; n_D=1.90, \nu=40; n_D=2.00, \nu=35$ の各点をつないだ線で示され、およそ $n_D=1.70\sim 2.00$ の間に来る。以上はガラス化範囲から求めたものであり、熔融量の問題もあるので、実用的意味ではこの線よりさらに内側に入ることは当然で、いわば硼酸ランタン系ガラスの可能な境界線というべきであろう。

なおこの議論が4成分だけを基礎として、5成分系あるいはそれ以上の多成分系を無視している点については、前述のように4成分系と5成分系とはその光学的領域に大差ないからで(5成分系中 $B_2O_3-La_2O_3-ZrO_2-ThO_2-Ta_2O_5$ 系は最も高屈折低分散ガラスと考えられる)、さらに多成分系にもっていても a/k の大きい Th, Zr などの特長が、 a/k の小さい成分によって平均化され

る効果が大い、とみられる点を考慮した結果である。

最後に、アルミニウムの系について一言ふれて置きたい。 Al_2O_3 を加えることにより修飾イオンの入る量がふえ、ガラス化範囲の広がることは前述の通りで、3成分系、4成分系(図-7~10)でもその効果はあった。そこでさらに $B_2O_3-La_2O_3-Al_2O_3-ThO_2-Ta_2O_5$ の5成分系を調べてみたが、図-16にみるように Al_2O_3 と共に Ta_2O_5, ThO_2 側のガラス化範囲は広がるが、 Ta_2O_5 の少い側のガラス化範囲はほとんど変化していない。高屈折・低分散側の境界は Ta_2O_5 の少い側の境界で決まるので、ここでも5成分系ではアルミニウムの効果が期待できないことを示している。したがってアルミナを含む系は4成分系で打切った。

V. むすび

以上 $TiO_2, ZrO_2, ThO_2, Nb_2O_5, Ta_2O_5, WO_3$ など6種のa族高原子価酸化物を含む、4および5成分の硼酸ランタン系ならびに BaO, Al_2O_3 を含む若干の系について、ガラス化範囲と各系のガラスの屈折率および Abbe 数の測定を行い、別報⁹⁾の計算式で各成分因子を求め、 n_D および ν に関して計算値と実測値とが一致することを確めた。その結果上記計算式と成分因子を使って、各組成のガラスの屈折率と Abbe がほぼ正確に計算出来ることが解ったので、ガラス化範囲の結果を利用し、 $n_D-\nu$ 図表上に以上の各系の光学的領域を求めてみた。硼酸ランタン系ガラスの高屈折・低分散側の境界は、ほぼ $n_D=1.70, \nu=55; n_D=1.80, \nu=50; n_D=1.90, \nu=40; n_D=2.00, \nu=35$ の各点をつないだ線で示され、およそ $n_D=1.70\sim 2.00$ の間にあることが解った。また4成分以上の多成分系についても、3成分系の場合同様にガラス化範囲がガラス化条件から求められることも確められた(実際には4成分系までで、それ以上は取扱いが非常に複雑になる)。

終りにガラス研磨にお世話になった千代田光学の金子昌能氏、実験ならびに測定された佐竹一謙、杉本一、中島正江の諸君に謝意を表す。

引用文献

- 1) W.G. Morey. Brit. Pat. 462,304 (1937); U.S. Pat. 2,150,694 (1939)
- 2) L.W. Eberlin. U.S. Pat. 2,206,081 (1940); 2,214,249 (1941)
- 3) K.H. Sun. U.S. Pat. 2,430,540; 2,434,147~50 (1947); Glass Ind., 28, 637 (1947); 29, 83 (1948)
- 4) K.H. Sun, T.E. Callear. U.S. Pat. 2,466,510 (1948)
- 5) 今岡 稔. 窯協, 67, 364 (1959)
- 6) 今岡 稔. 窯協, 69, 282 (1961); 生研報告, 6 [4] 127 (1957)
- 7) 今岡 稔. 工化, 64, 871 (1961)
- 8) 今岡 稔. 山崎敏子. 窯協, 70 [4] 89 (1962)
- 9) 泉谷徹郎. 大工試験報告, No. 311 (1958)

(8/29/61 受付)

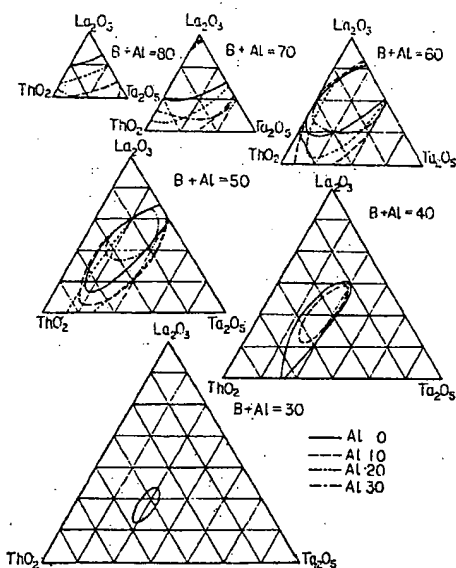


Fig. 16. Glass formation range of $B_2O_3-La_2O_3-Al_2O_3-ThO_2-Ta_2O_5$ system.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Melting in platinum crucible.

Measurements of refractive index by Pulfrich refractometer.

Reference:

Imaoka M. and Yamazaki T., J.Ceram.Assoc.Jpn, 1962, vol. 70, No. 5, p. 115.

Mol.% by batch

GNo	B ₂ O ₃	La ₂ O ₃	TiO ₂	ZrO ₂	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	WO ₃	Al ₂ O ₃	n _D	v
146372	24.21	51.33	5.05	19.41	-	-	-	-	-	1.851	-
146373	19.37	56.66	11.11	12.86	-	-	-	-	-	1.9135	32
146374	20.34	53.19	10.41	16.06	-	-	-	-	-	1.8982	31.5
146375	18.46	49.37	18.16	14.01	-	-	-	-	-	1.9443	-
146376	28.93	56.4	5.53	-	9.14	-	-	-	-	1.8183	41.5
146377	25.56	23.93	11.73	-	38.78	-	-	-	-	1.8556	34.4
146378	26.77	37.58	15.35	-	20.3	-	-	-	-	1.8737	30.1
146379	21.24	37.28	21.33	-	20.14	-	-	-	-	1.9489	27
146380	15.58	45.68	8.99	-	-	29.75	-	-	-	2.0167	25.2
146381	17.72	46.03	13.57	-	-	22.67	-	-	-	2.0109	24.3
146382	11.3	44.08	8.65	-	-	35.97	-	-	-	2.0796	-
146383	15.37	44.85	15.4	-	-	-	24.38	-	-	1.9891	-
146384	16.05	46.96	11.51	-	-	-	25.48	-	-	1.9707	-
146385	15.89	46.48	4.56	-	-	-	-	33.07	-	1.9061	-
146386	18.27	53.43	13.1	-	-	-	-	15.21	-	1.9402	-
146387	16.4	42.88	4.2	-	-	-	-	36.53	-	1.8852	31.9
146388	15.02	44.62	16.44	-	-	-	-	23.93	-	1.9731	25.8
146389	20.27	21.08	-	15.94	42.71	-	-	-	-	1.8178	43.8
146390	16.95	19.83	-	15.	48.22	-	-	-	-	1.8439	41.2
146391	20.02	28.03	-	14.16	37.8	-	-	-	-	1.8488	41.9
146392	18.25	51.26	-	9.66	-	20.83	-	-	-	1.9215	-
146393	18.91	53.21	-	13.42	-	14.47	-	-	-	1.9078	35.3
146394	19.45	45.52	-	10.33	-	-	24.7	-	-	1.872	39.4
146395	15.11	44.2	-	16.72	-	-	23.98	-	-	1.9082	37.3
146396	15.99	46.77	-	10.61	-	-	-	26.63	-	1.8694	36.4
146397	13.37	44.69	-	10.14	-	-	-	31.8	-	1.8898	33.4
146398	15.73	52.61	7.75	23.91	-	-	-	-	-	1.895	34
146399	14.22	24.96	-	-	40.45	20.36	-	-	-	1.971	31.2
146400	16.56	34.45	-	-	27.92	21.08	-	-	-	1.9466	32.5
146401	17.2	38.68	-	-	25.16	18.96	-	-	-	1.9414	34.1
146402	15.51	18.1	-	-	44.16	22.23	-	-	-	1.943	31
146403	23.53	36.71	-	-	14.87	-	24.89	-	-	1.8172	40.8
146404	16.66	38.98	-	-	12.64	-	31.72	-	-	1.8905	38.7
146405	30.04	34.99	-	-	18.96	-	16.01	-	-	1.7797	45.2
146406	17.67	33.08	-	-	26.81	-	22.43	-	-	1.8891	40.7
146407	10.66	25.01	-	-	30.4	-	33.92	-	-	1.9723	35.6
146408	24.77	38.64	-	-	23.49	-	13.1	-	-	1.8012	45.7
146409	17.4	40.71	-	-	19.8	-	22.09	-	-	1.8889	41.1
146410	16.91	31.65	-	-	19.24	-	32.2	-	-	1.8979	37.7
146411	14.74	34.48	-	-	13.97	-	-	36.81	-	1.8755	34.8
146412	10.02	31.27	-	-	25.34	-	-	33.37	-	1.9314	33.9
146413	14.85	26.07	-	-	28.17	-	-	30.91	-	1.8905	35.6

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GNo	B ₂ O ₃	La ₂ O ₃	TiO ₂	ZrO ₂	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	WO ₃	Al ₂ O ₃	n _D	v
146414	14.12	44.04	-	-	-	11.98	29.87	-	-	1.9594	-
146415	17.12	48.07	-	-	-	13.07	21.73	-	-	1.9253	-
146416	9.86	38.46	-	-	-	18.83	-	32.85	-	1.9976	27
146417	14.24	41.65	-	-	-	20.39	-	23.71	-	1.9555	28.5
146418	9.78	38.16	-	-	-	24.9	-	27.15	-	2.0019	25.2
146419	13.17	38.52	-	-	-	-	20.9	27.41	-	1.9241	33.2
146420	13.59	42.49	-	-	-	-	28.81	15.12	-	1.9289	-
146421	11.54	42.43	-	-	-	-	19.11	26.92	-	1.9441	-
146422	25.5	32.54	-	-	35.17	-	-	-	6.79	1.7698	50.6
146423	24.99	42.52	-	-	25.84	-	-	-	6.65	1.776	51.1
146424	28.12	32.9	-	-	35.55	-	-	-	3.43	1.7665	51.8
146425	26.03	22.15	-	-	44.88	-	-	-	6.93	1.7542	49.9
146426	14.04	43.81	16.11	8.28	17.75	-	-	-	-	1.9921	26.7
146427	14.82	39.9	9.78	11.3	24.21	-	-	-	-	1.956	-
146428	14.73	45.96	16.9	13.04	-	9.37	-	-	-	1.9904	-
146429	13.38	41.76	15.36	3.95	-	25.55	-	-	-	2.0574	-
146430	10.87	50.88	4.16	6.41	-	27.67	-	-	-	2.0315	26.6
146431	12.27	41.02	4.02	9.31	-	-	33.38	-	-	1.9596	31.5
146432	10.09	47.21	7.72	2.98	-	-	32.01	-	-	1.9989	28.3
146433	16.24	43.42	13.31	12.32	-	-	14.72	-	-	1.9533	-
146434	13.64	42.56	13.04	8.05	-	-	-	22.71	-	1.9527	-
146435	10.83	50.67	2.07	6.39	-	-	-	30.05	-	1.9233	33
146436	13.46	31.5	3.82	-	25.53	25.7	-	-	-	2.015	-
146437	13.2	35.15	8.62	-	21.44	21.58	-	-	-	2.0216	24.9
146438	14.69	39.1	14.43	-	15.84	15.95	-	-	-	2.0222	24.1
146439	12.69	39.6	7.3	-	8.1	32.31	-	-	-	2.0447	25.8
146440	10.83	16.9	8.28	-	41.08	-	22.91	-	-	2.024	27.3
146441	14.81	34.75	12.78	-	14.08	-	23.57	-	-	1.9835	26.4
146442	10.58	28.41	3.46	-	28.69	-	28.85	-	-	1.9968	-
146443	8.93	27.86	6.83	-	28.16	-	28.23	-	-	2.0369	-
146444	11.2	41.69	15.38	-	16.89	-	-	14.83	-	2.0089	-
146445	9.68	36.04	6.65	-	21.98	-	-	25.65	-	1.9802	29.5
146446	10.81	33.73	4.13	-	27.33	-	-	24.	-	1.965	31.3
146447	14.43	37.02	13.61	-	-	22.65	12.28	-	-	2.0377	-
146448	13.73	48.18	9.82	-	-	6.48	21.78	-	-	2.0078	26.3
146449	13.1	45.99	5.62	-	-	25.01	10.28	-	-	2.029	26.9
146450	11.71	36.53	8.96	-	-	29.8	-	13.	-	2.0632	-
146451	9.24	43.24	3.49	-	-	23.52	-	20.51	-	2.039	-
146452	12.34	49.61	6.08	-	-	20.24	-	11.73	-	2.0175	25.9
146453	14.91	40.01	14.69	-	-	16.24	-	14.16	-	2.0072	23.2
146454	8.74	40.88	3.33	-	-	-	27.72	19.33	-	2.0067	-
146455	12.07	42.35	6.92	-	-	-	28.61	10.05	-	1.9883	-
146456	13.61	36.64	11.19	-	-	-	12.49	26.07	-	1.9647	26.4
146457	16.18	33.69	-	15.89	27.3	6.95	-	-	-	1.8954	-
146458	13.66	31.96	-	9.03	32.31	13.04	-	-	-	1.9431	35.2
146459	10.94	17.06	-	9.68	48.4	13.92	-	-	-	1.9499	32.9
146460	12.56	39.23	-	7.39	5.36	-	35.47	-	-	1.947	-

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GNo	B ₂ O ₃	La ₂ O ₃	TiO ₂	ZrO ₂	ThO ₂	Nb ₂ O ₅	Ta ₂ O ₅	WO ₃	Al ₂ O ₃	n _D	v
146461	11.62	30.83	-	11.66	24.99	-	20.91	-	-	1.9441	38
146462	9.64	25.73	-	7.27	31.28	-	26.08	-	-	1.972	35.5
146463	11.74	27.47	-	5.19	27.76	-	27.84	-	-	1.9517	36.2
146464	11.49	15.34	-	8.79	43.57	-	20.8	-	-	1.9187	37.5
146465	11.75	31.47	-	8.89	25.5	-	-	22.39	-	1.9165	38
146466	11.57	18.05	-	13.65	43.88	-	-	12.84	-	1.8833	38.3
146467	10.7	16.69	-	3.16	33.82	-	-	35.63	-	1.89	-
146468	11.43	40.11	-	5.06	-	16.3	27.1	-	-	1.9991	28.1
146469	9.76	45.66	-	11.51	-	12.42	20.64	-	-	1.9665	32.1
146470	6.28	44.06	-	5.56	-	17.97	-	26.13	-	2.0396	26.2
146471	7.06	39.72	-	7.51	-	-	26.93	18.78	-	1.9963	30.1
146472	11.1	39.13	-	4.95	-	-	35.51	9.32	-	1.9571	-
146473	8.38	39.1	-	7.39	-	-	26.51	18.62	-	1.9813	30.7
146474	9.08	14.17	-	-	40.19	17.34	19.22	-	-	2.004	27.6
146475	9.8	26.17	-	-	31.92	5.39	26.71	-	-	2.0029	-
146476	10.07	15.71	-	-	38.21	19.23	-	16.77	-	1.9854	28.4
146477	9.47	29.44	-	-	23.86	5.69	-	31.54	-	1.9598	31.9
146478	9.23	28.68	-	-	29.12	17.61	-	15.36	-	2.0168	28.6
146479	7.85	24.5	-	-	29.78	-	24.83	13.03	-	1.9958	31.7
146480	12.24	38.13	-	-	-	10.37	25.76	13.51	-	1.9684	30.2
146481	9.27	43.39	-	-	-	11.8	9.81	25.73	-	1.9963	-
146482	23.27	32.67	5.34	-	35.3	-	-	-	3.41	1.8247	-
146483	11.27	43.93	-	9.97	-	-	23.83	-	11.	1.8653	40.1
146484	15.29	44.71	-	10.15	-	-	24.26	-	5.6	1.8688	39.3
146485	9.84	30.69	-	-	18.65	-	31.22	-	9.6	1.8971	37.2
146486	11.12	37.2	-	-	12.03	-	30.31	-	9.34	1.8933	38.5

--- PAGE BLANK (USPTO)